

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-237507

(43)Date of publication of application : 31.08.2001

(51)Int.Cl.

H05K 1/03  
G08K 7/00  
C08L101/00  
H01L 23/12  
H01L 23/14  
H05K 3/46  
// H01B 3/00  
H05K 1/16

(21)Application number : 2000-047236

(71)Applicant : NGK SPARK PLUG CO LTD

(22)Date of filing : 24.02.2000

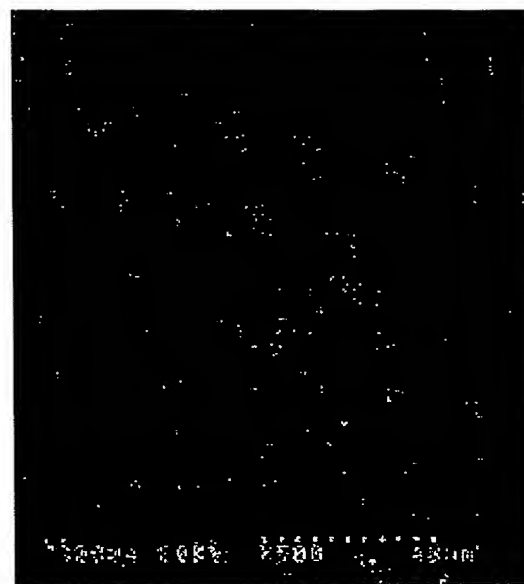
(72)Inventor : INUI YASUHIKO  
KOJIMA TOSHIFUMI  
OKUYAMA MASAHIKO

(54) HIGH PERMITTIVITY COMPOSITE MATERIAL, PRINTED WIRING BOARD USING IT, AND MULTILAYER PRINTED WIRING BOARD

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To inexpensively provide a high permittivity composite material having excellent heat-resistant shock sensitivity and sufficient permittivity, a printed wiring board using the high permittivity composite material, and a multiplayer printed wiring board.

SOLUTION: In this high permittivity composite material, a thermosetting resin and a dielectric filler are at least included (a), the dielectric filler has two kinds of average length diameters (b), the particle shape of the dielectric filler having the large average length diameter being exposed on the lap polishing surface of the high permittivity composite material is mainly set to nearly triangular and rectangular shapes (c), and the dielectric filler contained in a high permittivity composite material of 100 vol.% is set to 65 to 90 vol.% (d).



CLAIMS

---

## [Claim(s)]

[Claim 1] High dielectric constant composite material characterized by providing the configuration of the following (a) thru/or (d).

(a) Thermosetting resin and a dielectric filler are included at least.

(b) This dielectric filler has two sorts of average major axes.

(c) The particle shape of the dielectric filler which has the large average major axis exposed to the lap polished surface of this high dielectric constant composite material makes a subject the shape of abbreviation 3 corniform and an abbreviation rectangle.

(d) This dielectric filler contained in this high dielectric constant composite-material 100 volume % is 65 to 90 volume %.

[Claim 2] High dielectric constant composite material according to claim 1 characterized by hardening contraction of said thermosetting resin being 3 - 20%.

[Claim 3] The printed wired board which has the dielectric layer which consists of a high dielectric constant composite material according to claim 1 or 2.

[Claim 4] The multilayer printed wiring board which has the dielectric layer which consists of a high dielectric constant composite material according to claim 1 or 2.

[Means for Solving the Problem]

## DETAILED DESCRIPTION

## [Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Industrial Application] This invention relates to the high dielectric constant composite material used for a printed wired board. It is suitable to form the high dielectric layer united with an IC package, a module substrate, electronic parts, etc. It is suitable to form the inner layer capacitor layer of the printed wired board of a multilayer mold especially.

[0002]

[Description of the Prior Art] There is a problem of the effect of an electric noise as one of the causes of a data error of IC (integrated circuit). In order to suppress the effect of an electric noise, the approach of forming a capacitor with a big capacity in a printed wired board, and removing an electric noise (especially radio noise) is learned.

[0003] There is a method of using for the inner layer of a printed wired board a dielectric filler besides [ which attaches external capacitors, such as a chip capacitor, in a printed wired board ] an approach as an approach of forming a capacitor in a printed wired board, and giving the function of a capacitor to the printed wired board itself. When the miniaturization of an electronic product in recent years is taken into consideration, the approach of the latter which uses a dielectric filler for a inner layer and is used as a capacitor is desirable.

[0004] The printed wired board which used for the inner layer capacitor the composite material which mixed thermoplastics and a dielectric filler is indicated by JP,5-57851,A and JP,5-57852,A. Moreover, the printed wired board which used for the inner layer capacitor the composite material which mixed thermosetting resin and a dielectric filler is indicated by JP,7-9609,A.

[0005] However, the value of the dielectric constant of the inner layer capacitor obtained by the composite-material system which mixed thermoplastics or conventional thermosetting resin, and a conventional dielectric filler had less than 20 (6-16) and a low problem. Only by increasing the addition of a dielectric filler, it was difficult to raise to sufficient dielectric constant (100 or more [ 60 or more / Ten or more desirably / still more desirably ]).

[0006] It is thought that it is based on the reason indicated by papers (R. E.Newnham et.al., Mat.Res.Bull.vol13, p.525-536., 1978.), such as Newnham, that the dielectric constant of the above-mentioned composite-material system does not increase. That is, when the composite material which the dielectric filler is distributing in resin is considered in an equal circuit, the capacity component of a dielectric filler and the capacity component of the resinous principle which fills between dielectric fillers become close to the so-called "serial model" circuit connected in serial. Therefore, it is thought that it is almost ineffective however it may add a dielectric filler with high electrostatic capacity so much since the dielectric constant as a composite-material system is greatly influenced by the dielectric constant of a resinous principle.

[0007] Although what is necessary is just to have brought close to the so-called "juxtaposition model" circuit where the capacity component of a dielectric filler and the capacity component of the resinous principle which fills between dielectric fillers were connected in juxtaposition in order to have gathered the dielectric constant of composite material, sufficient effectiveness was not acquired only by changing an addition, the particle diameter of a dielectric filler, etc. Then, the approach of forming into high restoration as a dielectric filler to be used using two or more sorts of particle size distributions, i.e., the powder which has two or more sorts of mean particle diameter, is indicated by JP,53-88198,A.

[0008]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] However, when a inner layer capacitor is formed in a printed wired board using the high dielectric constant composite material which contains thermosetting resin and a dielectric filler at least, there is a problem which a crack generates in a dielectric layer in a heat-resistant impact test. Especially this problem is actualized when a multilayer printed wiring board is formed. This invention aims at offering cheaply the printed wired board and multilayer printed wiring board using the high dielectric constant composite material and it which combined sufficient dielectric constant and the outstanding thermal shock resistance.

[0009]

[Means for Solving the Problem] Invention of claim 1 makes a summary high dielectric constant composite material which improved thermal shock resistance by providing the configuration of the following (a) thru/or (e). About each requirement for a configuration, it \*\*\*\* below.

[0010] (a) Thermosetting resin and a dielectric filler should be included at least. By considering as the

high dielectric constant composite material which used thermosetting resin and a dielectric filler as the base, the dielectric layer on a printed wired board can be formed easily. Since heat curing of the obtained dielectric layer is carried out, problems, such as heat deformation at the time of a pewter reflow (260 degrees C or more of maximum temperatures), do not generate it like [ at the time of using thermoplastics ]. In order to form a dielectric layer using high dielectric constant composite material, the well-known formation approach of being as making it the shape of a varnish and screen-stenciling \*\*\*\* [ , and ] can be used. [ making it the shape of a sheet and laminating ]

[0011] It is good in hardening contraction of said thermosetting resin being 3 - 20%. If it contacts each other compulsorily in dielectric fillers using the big resin of hardening contraction, a high dielectric component [ \*\*\*\* / in three dimensions ] will be formed. The equal circuit of this condition approaches ideal "juxtaposition model" from the conventional "serial model", and, therefore, the dielectric constant of the whole composite material is imagined to be what going up.

[0012] Although hardening contraction of thermosetting resin should just be 3 - 20% of range, it is 3 - 7% 3 to 10% especially preferably. It is because the rate of change of the capacity value of the dielectric layer after a spalling test can be stopped small. While compressive stress is applied to a dielectric filler and the contact condition between dielectric fillers is kept good by setting hardening contraction of thermosetting resin as the predetermined range, the endurance (especially thermal shock resistance) over the thermal stress of the dielectric layer itself can be raised.

[0013] (b) A dielectric filler should have two sorts of average major axes. The fill and pack density of a dielectric filler in high dielectric constant composite material can be effectively improved by using the so-called "bimodal" dielectric filler which has two sorts of average major axes. Consequently, the contact condition of dielectric fillers becomes good and can make a dielectric constant epsilon high. Measurement of the "average major axis" said here is good to carry out [ of the lap cross section (the so-called mirror-polishing side) of high dielectric constant composite material ] organization observation. For example, it is simple to check using the photograph which photoed the SEM image 500 times the scale factor of this, and it is good. A major axis is good to take an epilogue and its die length for for two points which one dielectric filler particle left most in a straight line. The dielectric filler particle of 10 is extracted from per photograph of the above-mentioned SEM image to arbitration, and the average is taken. About one sample, the activity same about at least three or more locations is done, and the comprehensive average is taken as an average major axis of a dielectric filler particle.

[0014] (c) The particle shape of the dielectric filler which has the large average major axis exposed to the lap polished surface of high dielectric constant composite material should make a subject the shape of abbreviation 3 corniform and an abbreviation rectangle. By making the shape of abbreviation 3 corniform and an abbreviation rectangle into a subject for the configuration with a large average major axis of a dielectric filler, the restoration condition of the dielectric filler in high dielectric constant composite material can be made good, without using a spherical particle. Furthermore, improvement in the contact nature of the further fill and particles of the small dielectric filler of an average major axis is attained by filling up the clearance between large dielectric fillers. Consequently, till then, it is independent, and the contact nature of the dielectric filler which existed also improves and a dielectric constant epsilon can improve further. Since it is "considering as a subject", you may be mixture with other dielectric fillers of an indeterminate form. Although it is desirable that it is approximately spherical although especially the dielectric filler of a small average major axis is not limited especially because of improvement in restoration nature and dielectric characteristics, otherwise, you may be the shape of an indeterminate form, and such mixture.

[0015] It is good to adjust as relation of the average major axis of the dielectric filler particle of the shape of abbreviation 3 corniform and an abbreviation rectangle, so that it may become the relation of (the average major axis of the average major-axis >= abbreviation rectangle-like particle of an abbreviation 3 corniform particle). It is good to adjust so that it may become the relation of (the average major axis of the average major-axis > abbreviation rectangle-like particle of an abbreviation 3 corniform particle) especially. The small dielectric filler of an average major axis is because improvement in the contact nature of a fill and particles can be performed still better, when the clearance between the dielectric fillers of a large average major axis is filled up easily. Measurement of the "average major axis" said here is good to carry out [ of the lap cross section (the so-called mirror-polishing side) of high dielectric constant composite material ] organization observation. For example, it is simple to check using the photograph which photoed the SEM image 500 times the scale factor of this, and it is good. A major axis is good to take an epilogue and its die length for for two points which one dielectric filler particle left most in a straight line. The dielectric filler particle of 10 is extracted from per photograph of

the above-mentioned SEM image to arbitration, and the average is taken. About one sample, the activity same about at least three or more locations is done, and the comprehensive average is taken as an average major axis of a dielectric filler particle.

[0016] In this invention, "abbreviation 3 corniform" means the thing of a configuration which can recognize the particle shape of the dielectric filler which has the large average major axis exposed to the lap polished surface of high dielectric constant composite material to be a triangle under an electron microscope or optical microscope observation. Moreover, "the shape of an abbreviation rectangle" means the thing of a configuration which can recognize the particle shape of the dielectric filler which has the large average major axis exposed to the lap polished surface of high dielectric constant composite material to be a rectangle under an electron microscope or optical microscope observation. It is a concept also containing the thing which is said here and which is "being able to recognize it as a rectangle" not only to the shape of a forward rectangle but to the shape of the shape of a rhombus, and a parallelogram.

[0017] If a third person classifies the profile configuration on a socially accepted idea even if "it can recognize" is necessarily neither a strict triangle nor a rectangle, things are shown that what is necessary is just what can be judged to be a triangle and a rectangle. [ which is said here ] For example, even if there is no number of corners strictly three and four, a third person just judges it as a triangle and a rectangle on a classification. Moreover, you may be the configuration which has the curve of irregularity or some in the side, and the configuration which beveled the corner round. That is, if it observes neighboring [ a part of ], it will not be a triangle and a rectangle strictly, but when it observes as a whole, classification recognition should just be carried out with a triangle and a rectangle. You may necessarily be neither an equilateral triangle nor a forward rectangle.

[0018] Drawing 1 is the SEM photograph image of the example (example 9) of the lap cross section of high dielectric constant composite material. Drawing 2 is the explanatory view which expressed the SEM photograph image of drawing 1 typically. 30a-30j show the particle of the dielectric filler of abbreviation 3 corniform among drawing 2, and the particle of an abbreviation rectangle-like dielectric filler is shown 40a-40g. Although it is not necessarily a strict triangle and a rectangle, if a third person classifies the profile configuration on a socially accepted idea, as for each particle, it turns out that it is what can be judged to be a triangle and a rectangle, so that it may illustrate here.

[0019] (d) This dielectric filler contained in this high dielectric constant composite-material 100 volume % should be 65 to 90 volume %. The addition of a dielectric filler has good 65 - 90 volume % of the whole (100 volume %) high dielectric constant composite material. The reason specified in this range is as follows. It is because a dielectric constant epsilon rises rapidly in order for the contact nature of dielectric fillers to improve and to approach an ideal juxtaposition model from the conventional serial model, if the addition of a dielectric filler is more than 65 volume %. On the other hand, since the moldability of high dielectric constant composite material worsens above 90 volume % and it becomes easy to generate a void and a crack, it is not desirable.

[0020] Invention of claim 1 is good in it being the high dielectric constant composite material which specified the average major axis of the dielectric filler which has large mean particle diameter, and the average major axis of the dielectric filler which has a small average major axis as the predetermined range.

[0021] The average major axis of a large filler is 5-50 micrometers, the diameter of maximum length is 80 micrometers or less, and the average major axis of a small filler is good in it being 0.5-3 micrometers. It is because it thickens that it is except this range in the case of resin \*\*\*\* and high restoration of a dielectric filler becomes difficult. That is, the difference of an average major axis is good in 1 micrometers or more being required also of min.

[0022] A moldability if max exceeds 80 micrometers, in case the average major axis of a large filler will form in the shape of a sheet as a inner layer capacitor by 50 micrometers or more will worsen, and a void will occur. Moreover, it thickens, in case it is resin \*\*\*\* as the average major axis of a small filler is 0.5 micrometers or less, and high restoration of a dielectric filler becomes difficult.

[0023] In addition, it is good in it being the high dielectric constant composite material which specified the relation of each rate of combination of the dielectric filler which has the large mean particle diameter contained in high dielectric constant composite-material 100 mass %, and the dielectric filler which has small mean particle diameter. 5 - 20 mass % has the good dielectric filler in which the dielectric filler which has large mean particle diameter as a rate of combination of each dielectric filler has 80 to 95 mass %, and small mean particle diameter. It is because a small dielectric filler cannot fully fill the clearance between these dielectric fillers then large out of range and cannot carry out [ high

\*\*\*\*]-izing of it. Moreover, if [ than the small range of dielectric filler predetermined ] more, it cannot be high-filled up by thickening.

[0024] Invention of claim 2 makes a summary high dielectric constant composite material whose hardening contraction of said thermosetting resin is 3 - 20%. Although the detail of the reason the dielectric constant of high dielectric constant composite material rises by specifying hardening contraction of the thermosetting resin to be used in the predetermined range is unknown, it guesses for the high dielectric constant fillers contained in high dielectric constant composite material by hardening contraction of thermosetting resin contacting each other compulsorily. If it contacts each other compulsorily in dielectric fillers using the big resin of hardening contraction, a high dielectric component [ \*\*\*\* / in three dimensions ] will be formed. The equal circuit of this condition approaches ideal "juxtaposition model" from the conventional "serial model", and, therefore, the dielectric constant of the whole composite material is imagined to be what going up.

[0025] Although hardening contraction of thermosetting resin should just be 3 - 20% of range, it is 3 - 7% 3 to 10% especially preferably. It is because the rate of change of the capacity value of the dielectric layer after a spalling test can be stopped small. While compressive stress is applied to a dielectric filler and the contact condition between dielectric fillers is kept good by setting hardening contraction of thermosetting resin as the predetermined range, the endurance (especially thermal shock resistance) over the thermal stress of the dielectric layer itself can be raised. On the other hand, when hardening contraction of thermosetting resin becomes out of range, it is the inclination for the dependability of a dielectric layer to fall. Since the force of drawing high dielectric constant fillers near as hardening contraction is 3% or less, and making it contacting continuously is small, contact of quantity dielectric constant fillers decreases, and the dielectric constant of composite material becomes small. When hardening contraction is 20% or more, the internal stress generated at the time of heat curing may become large, and a crack may occur in composite material.

[0026] "Hardening contraction" said here means that for which it asked by the following approaches. That is, a thermosetting resin simple substance is slushed into a mold (phi83mm petri dish made from Teflon), heat hardening is carried out on the conditions of 150 degree-Cx 5 hours, and it computes using the following formulas 1 from the dimension of a hardening object and the dimension of a mold which were obtained.

[0027]

[Equation 1] Hardening contraction =  $\{1 - (\text{resin dimension} / \text{molded dimension after hardening})\} \times 100 (\%)$

[0028] Invention of claim 3 makes a summary the printed wired board which has the dielectric layer which consists of high dielectric constant composite material explained above. A highly efficient dielectric layer can be built in easily. It is suitable to obtain a wiring substrate with a built-in capacitor.

[0029] If a highly efficient dielectric layer is used for a inner layer capacitor etc., miniaturization of a printed wired board and high performance-ization can be attained. The starting printed wired board is applicable to an IC package, the module substrate of a high frequency application, electronic parts, etc. It is suitable for the application which is especially easy to be influenced of electric noises (radio noise etc.).

[0030] As a concrete configuration, the structure of drawing 3 and drawing 4 is mentioned, for example. Drawing 3 is the example of the laminating method whose dielectric layer 2 was pinched in the resin layer 3 and the resin layer 4. The part whose dielectric layer 2 was pinched by the wiring layer 6 for the 1st capacitor and the wiring layer 7 for the 2nd capacitor constitutes the capacitor. Moreover, drawing 4 is the example in which the dielectric layer 18 was formed on the core substrate 8. The part whose dielectric layer 18 was pinched by the wiring layer 17 for the 1st capacitor and the wiring layer 20 for the 2nd capacitor constitutes the capacitor.

[0031] This invention should just be the configuration that it is not limited only to the concrete configuration or the manufacture approach which are shown in drawing 3 and drawing 4, and the function as a inner layer capacitor can be demonstrated effectively. The configuration of a printed wired board can be used also with the mold formed in the mold formed only in one side, or both sides. It is good to form a photosensitive permanent resist as a protective coat if needed.

[0032] Invention of claim 4 makes a summary the multilayer printed wiring board which has the dielectric layer which consists of high dielectric constant composite material explained above. It is suitable to obtain the wiring substrate with a built-in capacitor corresponding to the formation of high density wiring, and high-capacity-izing while being able to build in a highly efficient dielectric layer easily. It is suitable when forming a multilayer printed wiring board for the beer hall and through hole for interlayer connections especially using laser (the so-called laser beer process). It is because it is not necessary to



give photosensitivity to the thermosetting resin used for high dielectric constant composite material so, and high dependability can be acquired to a pressure cooker bias trial etc.

[0033] If a highly efficient dielectric layer is built in as a inner layer capacitor etc. using a multilayering technique, much more miniaturization of a printed wired board and high performance-ization can be attained. The starting printed wired board is applicable to a multilayer IC package, the multilayer module substrate of a high frequency application, multilayer electronic parts, etc. It is suitable for the application which is especially easy to be influenced of electric noises (radio noise etc.).

[0034] As a concrete configuration, the structure of drawing 5 and drawing 6 is mentioned, for example. Drawing 5 shows an example of the build up method. The 1st resin insulating layer 10 is formed on the core substrate 8 which filled up the inside of a through hole with the filler 9, and the 1st beer wiring layer 11 and the wiring layer 12 for the 1st capacitor are formed using a photolithography technique and a plating technique. Subsequently, the high dielectric layer 13 is formed, on it, a laser beer technique and a plating technique are used and the 2nd beer wiring layer 14 and the wiring layer 15 for the 2nd capacitor are formed. Furthermore, the 2nd resin insulating layer 16 is formed on it. Drawing 6 is also an example by the build up method. On the core substrate 8 which filled up the inside of a through hole with the filler 9, a photolithography technique and a plating technique are used and the wiring layer 17 for the 1st capacitor is formed. Subsequently, the high dielectric layer 18 is formed, on it, a laser beer technique and a plating technique are used and the 2nd beer wiring layer 19 and the wiring layer 20 for the 2nd capacitor are formed. Furthermore, the resin insulating layer 21 is formed on it.

[0035] This invention should just be the configuration that it is not limited only to the concrete configuration or the manufacture approach which are shown in drawing 5 and drawing 6, and the function as a inner layer capacitor can be demonstrated effectively. The configuration of a multilayer printed wiring board can be used also with an one side laminating mold or a double-sided laminating mold. It can form in multilayering using well-known techniques, such as the laminating method and the build up method. It is good to form a photosensitive permanent resist as a protective coat if needed.

[0036]

[Example] (1) Mix the production resin and the dielectric filler of high dielectric constant composite material with the mixing ratio shown in Table 1, knead in 3 roll mills, and produce high dielectric constant composite material. The detail of the resin to be used and a dielectric filler is shown below. In addition, "bimodal one" says the case of the example in which a dielectric filler has two sorts of mean particle diameter, and, on the other hand, a "single mode" says the case of the example of a comparison for which a dielectric filler has single mean particle diameter.

[0037] In the notation in Table 1 Resin A; [ Epoxy resin (product made from oil-ized shell, YL983U) 95 mass % ] Imidazole system curing agent (Shikoku formation make, 2E4 MZ-CN) 5 mass % resin B; Epoxy resin (product made from oil-ized shell, E-828) 100 mass % Imidazole system curing agent (Shikoku formation make, 2E4 MZ-CN) 5 mass % Acid-anhydride curing agent (Nippon Kayaku make, kaya hard MCD) 85 mass % resin C; Epoxy resin (product made from oil-ized shell, E-828) 100 mass % acid-anhydride curing agent (Nippon Kayaku make, kaya hard MCD). 85 mass % triphenylphosphine 1 mass % filler: Barium titanate (what was ground and classified after the sintered compact)

Bimodal: 20micrometer(90 mass %)+2micrometer (10 mass %)

Single mode: It is 20 micrometers.

[0038] Hardening contraction of these resinous principles is searched for by the following approaches. That is, the above-mentioned resinous principle is slushed into a mold ( $\phi$ 83mm Teflon petri dish), heat hardening is carried out on the conditions of 150 degree-Cx 5 hours, and it computes using the aforementioned formula 1 from the dimension of a hardening object and the dimension of metal mold which were obtained. Hardening contraction of these resinous principles is 1.0% with Resin C 2.5% in Resin B 6.4% by Resin A.

[0039] (2) Apply to 300 micrometers in thickness the high dielectric constant composite material produced by (1) on the copper substrate with a measurement thickness [ of the dielectric constant of the hardening object of high dielectric constant composite material ] of 0.8mm, make it harden in 150 degree-Cx 5 hours, and produce the hardening object of high dielectric constant composite material. An impedance analyzer (the Hewlett Packard make, HP4194A) is used for the dielectric constant in 1MHz of the above-mentioned hardening object, and it is JIS. K It measures according to 6911. A result is shown in Table 1.

[0040] (3) Pay the sample which measured the dielectric constant by the heat-resistant impact test above (2) to the Tabai Espec spalling test machine, and it is -55--+125-degree C conditions, and is 1000 cycle \*\*\*\*. The dielectric constant was measured for the sample after test termination on the again

same conditions as the above (2), and it asked for the rate of change. A result is written together to Table 1.

[0041]

[Table 1]

試料 番号	樹脂 の種類	硬化 収縮(%)	誘電体フィラー		誘電率 $\epsilon$ (初期値)	変化率 (%)
			平均粒径のモード	添加量(体積%)		
1	A	6.4	—	0	4	—
2	A	6.4	バイモータル	25	6	<1
3	A	6.4	バイモータル	30	8	<1
4	A	6.4	バイモータル	50	27	<1
5	A	6.4	バイモータル	60	44	<1
6	A	6.4	バイモータル	65	60	<1
7	A	6.4	バイモータル	70	85	<1
8	A	6.4	バイモータル	75	110	<1
9	A	6.4	バイモータル	78	120	<1
10	A	6.4	バイモータル	85	130	<1
11	A	6.4	バイモータル	90	150	3
12	A	6.4	バイモータル	95	180	5
13	A	6.4	シングルモード	60	38	5
14	B	2.5	バイモータル	78	90	8
15	B	2.5	シングルモード	60	25	6
16	C	1.0	バイモータル	78	86	12
17	C	1.0	シングルモード	60	20	8

[0042] According to this invention, the result of Table 1 shows that the high dielectric constant composite material of the range from 8 to 180 where a dielectric constant is large is obtained. By carrying out the content of a dielectric filler more than 65 volume %, it turns out that 50 or more outstanding high dielectric constant composite material is obtained for a dielectric constant. Especially, it turns out by carrying out the content of a dielectric filler more than 70 volume % that 90 or more extremely excellent high dielectric constant composite material is obtained for a dielectric constant.

[0043] According to this invention, the result of Table 1 shows that the high dielectric constant composite material which has the dielectric constant of the large range is obtained. By carrying out the content of a dielectric filler more than 65 volume %, it turns out that 50 or more outstanding high dielectric constant composite material is obtained for a dielectric constant. Especially, it turns out by carrying out the content of a dielectric filler more than 70 volume % that 85 or more extremely excellent high dielectric constant composite material is obtained for a dielectric constant. The graph with which change of the dielectric constant epsilon to the content of the dielectric filler to a sample number 1 - a sample number 9 is expressed to drawing 7 is shown. When the content of a dielectric filler exceeds 65 mass %, it turns out that a dielectric constant epsilon rises rapidly.

[0044] The result of Table 1 shows that the rate of change after a spalling test becomes [ hardening contraction of thermosetting resin ] large at less than 3%. It turns out that endurance is increasing to thermal stress by compressive stress being applied to a dielectric filler by setting up hardening contraction of thermosetting resin to 3% or more in the dielectric layer itself while the contact condition between dielectric fillers is kept good.

[0045]

[Effect of the Invention] The high dielectric constant composite material of this invention can discover a high dielectric constant, though mixture of thermosetting resin and a high dielectric constant particle is used as a principal component. The high dielectric constant layer which consists of high dielectric constant composite material to apply can be used as an inner layer capacitor for removing the electric noise (especially radio noise) which poses a problem by the IC package made from plastics for MPU etc. The printed wired board which used the starting highly efficient high dielectric constant layer for the



JP,2001-237507,A [DETAILED DESCRIPTION]

7/7 ページ

inner layer capacitor etc. can attain miniaturization and high performance-ization.

(19) 日本国特許庁 (J P)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-237507

(P2001-237507A)

(43) 公開日 平成13年8月31日 (2001.8.31)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>

識別番号

F I

データベース\* (参考)

H 0 5 K 1/03

6 1 0

H 0 5 K 1/03

6 1 0 H

4 E 3 5 1

6 1 0 R

4 J 0 0 2

C 0 8 K 7/00

C 0 8 K 7/00

5 E 3 4 6

C 0 8 L 101/00

C 0 8 L 101/00

5 G 3 0 3

H 0 1 L 23/12

H 0 1 L 23/12

3 0 1 Z

審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全 8 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号

特願2000-47236(P2000-47236)

(22) 出願日

平成12年2月24日 (2000.2.24)

(71) 出願人

000004547

日本特殊陶業株式会社

愛知県名古屋市瑞穂区高辻町14番18号

(72) 発明者

乾 靖彦

愛知県名古屋市瑞穂区高辻町14番18号 日

本特殊陶業株式会社内

(72) 発明者

小嶋 敏文

愛知県名古屋市瑞穂区高辻町14番18号 日

本特殊陶業株式会社内

(72) 発明者

奥山 雅彦

愛知県名古屋市瑞穂区高辻町14番18号 日

本特殊陶業株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 高誘電率複合材料及びそれを用いたプリント配線板並びに多層プリント配線板

(57) 【要約】

【目的】 優れた耐熱衝撃性と十分な誘電率を兼備した高誘電率複合材料及びそれを用いたプリント配線板及び多層プリント配線板を安価に提供すること。

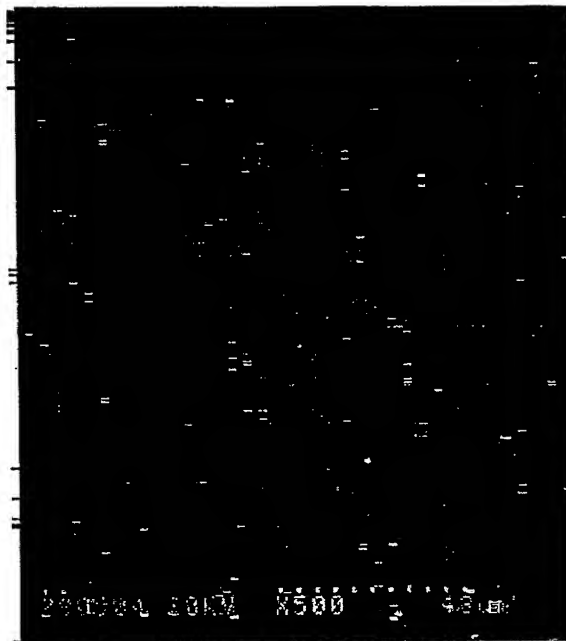
【構成】 以下の (a) 乃至 (d) の構成を具備することを特徴とする高誘電率複合材料を用いる。

(a) 熱硬化性樹脂と誘電体フィラーとを少なくとも含む。

(b) 該誘電体フィラーが2種の平均長径を有する。

(c) 該高誘電率複合材料のラップ研磨面に露出する大きい平均長径を有する誘電体フィラーの粒子形状が、略三角状及び略長方形状を主体とする。

(d) 該高誘電率複合材料100体積%中に含まれる該誘電体フィラーが65～90体積%である。



200004 10002 X500 4.8um

(2) 001-237507 (P2001-237507A)

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 以下の(a)乃至(d)の構成を具備することを特徴とする高誘電率複合材料。

(a) 熱硬化性樹脂と誘電体フィラーとを少なくとも含む。

(b) 該誘電体フィラーが2種の平均長径を有する。

(c) 該高誘電率複合材料のラップ研磨面に露出する大きい平均長径を有する誘電体フィラーの粒子形状が、略三角状及び略長方形形状を主体とする。

(d) 該高誘電率複合材料100体積%中に含まれる該誘電体フィラーが65～90体積%である。

【請求項2】 前記熱硬化性樹脂の硬化収縮率が3～20%であることを特徴とする請求項1に記載の高誘電率複合材料。

【請求項3】 請求項1又は請求項2に記載の高誘電率複合材料からなる誘電体層を有するプリント配線板。

【請求項4】 請求項1又は請求項2に記載の高誘電率複合材料からなる誘電体層を有する多層プリント配線板。

【課題を解決するための手段】

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、プリント配線板に用いる高誘電率複合材料に関する。ICパッケージ、モジュール基板、電子部品等に一体化した高誘電体層を形成するのに好適である。特に、多層型のプリント配線板の内層キャパシタ層を形成するのに好適である。

【0002】

【従来の技術】 IC(集積回路)のデータエラーの原因の一つとして、電気的雑音の影響の問題がある。電気的雑音の影響を抑えるために、プリント配線板に容量の大きなキャパシタを設けて電気的雑音(特に高周波雑音)を取り除く方法が知られている。

【0003】 プリント配線板にキャパシタを設ける方法として、チップコンデンサ等の外部キャパシタをプリント配線板に取り付ける方法の他、誘電体フィラーをプリント配線板の内層に用いてプリント配線板自体にキャパシタの機能を持たせる方法がある。近年の電子製品の小型化を考慮すると、誘電体フィラーを内層に用いてキャパシタにする後者の方法が望ましい。

【0004】 熱可塑性樹脂と誘電体フィラーとを混合した複合材料を内層キャパシタに用いたプリント配線板が特開平5-57851号公報、特開平5-57852号公報に開示されている。また、熱硬化性樹脂と誘電体フィラーとを混合した複合材料を内層キャパシタに用いたプリント配線板が特開平7-9609号公報に開示されている。

【0005】 しかし、従来の熱可塑性樹脂または熱硬化性樹脂と誘電体フィラーとを混合した複合材料系で得られる内層キャパシタの誘電率の値は20未満(6～1

6)と低い問題があった。単に誘電体フィラーの添加量を増やすだけでは、十分な誘電率(10以上、望ましくは60以上、更に望ましくは100以上)に上げるのは困難であった。

【0006】 上記の複合材料系の誘電率が上がらないのは、Newnham等の論文(R. E. Newnham et al., Mat. Res. Bull. vol 13, p. 525～536., 1978.)に記載されている理由によると考えられる。すなわち、樹脂中に誘電体フィラーが分散している複合材料を等価回路で考えたとき、誘電体フィラーの容量成分と誘電体フィラー間を埋める樹脂成分の容量成分が直列的につながった、いわゆる「直列モデル」回路に近くなる。したがって、複合材料系としての誘電率は、樹脂成分の誘電率に大きく影響されるため、いくら高い静電容量を持った誘電体フィラーを多量に添加してもあまり効果が無いものと思われる。

【0007】 複合材料の誘電率を上げるには、誘電体フィラーの容量成分と誘電体フィラー間を埋める樹脂成分の容量成分が並列的につながった、いわゆる「並列モデル」回路に近づければ良いが、単に添加量や誘電体フィラーの粒子径等を変更するだけでは十分な効果は得られなかった。そこで、用いる誘電体フィラーとして、2種以上の粒度分布、すなわち、2種以上の平均粒径を有する粉末を用いて高充填化する方法が、特開昭53-88198号公報に開示されている。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】 しかし、熱硬化性樹脂と誘電体フィラーとを少なくとも含む高誘電率複合材料を用いてプリント配線板に内層キャパシタを形成した場合、耐熱衝撃試験において誘電体層にクラックが発生する問題がある。この問題は、特に多層プリント配線板を形成した場合において顕在化する。本発明は、優れた耐熱衝撃性と、十分な誘電率を兼備した高誘電率複合材料及びそれを用いたプリント配線板及び多層プリント配線板を安価に提供することを目的とする。

【0009】

【課題を解決するための手段】 請求項1の発明は、以下の(a)乃至(e)の構成を具備することで耐熱衝撃性を向上した高誘電率複合材料を要旨とする。各構成要件について、以下に分説する。

【0010】 (a) 熱硬化性樹脂と誘電体フィラーとを少なくとも含むこと。熱硬化性樹脂と誘電体フィラーをベースとした高誘電率複合材料とすることで、プリント配線板上での誘電体層の形成を容易に行うことができる。得られた誘電体層は熱硬化されているため、熱可塑性樹脂を用いた場合のようにハンダフロー(最高温度260℃以上)時の熱変形等の問題が発生することはない。高誘電率複合材料を用いて誘電体層を形成するには、シート状にしてラミネートしたり、ワニス状にして

(3) 001-237507 (P2001-237507A)

スクリーン印刷したりといった公知の形成方法を用いることができる。

【0011】前記熱硬化性樹脂の硬化収縮率が3～20%であるとよい。硬化収縮の大きな樹脂を用いて誘電体フィラー同士を強制的に接触し合うようにすると、三次元的に連続な高誘電体成分が形成される。この状態の等価回路は、従来の「直列モデル」から理想的な「並列モデル」に近づき、よって複合材料全体の誘電率は上昇するものと推察される。

【0012】熱硬化性樹脂の硬化収縮率は3～20%の範囲であればよいが、好ましくは3～10%、特に3～7%である。熱衝撃試験後の誘電体層の容量値の変化率を小さく抑えることができるからである。熱硬化性樹脂の硬化収縮率を所定の範囲に設定することで、誘電体フィラーに圧縮応力がかかって誘電体フィラー間の接触状態が良好に保たれるとともに、誘電体層自体の熱応力に対する耐久性（特に、耐熱衝撃性）を高めることができる。

【0013】(b) 誘電体フィラーが2種の平均長径を有すること。2種の平均長径を有する、いわゆる「バイモダル」の誘電体フィラーを用いることで、高誘電率複合材料中の誘電体フィラーの充填量及び充填密度を効果的に向上できる。その結果、誘電体フィラー同士の接触状態が良好になり、誘電率 $\epsilon$ を高くすることができる。ここにいう「平均長径」の測定は、高誘電率複合材料のラップ断面（いわゆる鏡面研磨面）の組織観察するのがよい。例えば、倍率500倍のSEM像を撮影した写真を用いて確認するのが簡便でよい。長径は、一つの誘電体フィラー粒子の最も離れた2点間を直線で結び、その長さを採るのがよい。上記のSEM像の写真1枚あたりから任意に10の誘電体フィラー粒子を抽出し、その平均値を採る。一つの試料については、少なくとも3個所以上の場所について同様の作業を行い、その総合平均値を誘電体フィラー粒子の平均長径として採る。

【0014】(c) 高誘電率複合材料のラップ研磨面に露出する大きい平均長径を有する誘電体フィラーの粒子形状が、略三角状及び略長方形形状を主体とすること。大きい平均長径を持つ誘電体フィラーの形状を略三角状及び略長方形形状を主体とすることで、球状粒子を用いることなく高誘電率複合材料中の誘電体フィラーの充填状態を良好にすることができる。更に、小さい平均長径の誘電体フィラーが、大きい誘電体フィラーの隙間に充填されることにより、さらなる充填量及び粒子同士の接触性の向上が可能となる。その結果、それまで独立で存在していた誘電体フィラーの接触性も向上し、誘電率 $\epsilon$ が更に向上できる。「主体とする」であるから、他の不定形状の誘電体フィラーとの混合物になっていてもよい。小さい平均長径の誘電体フィラーは特に限定されないが、略球状であることが充填性及び誘電特性の向上のために特に好ましいが、他に不定形状、或いはこれらの混

合物であってもよい。

【0015】略三角状及び略長方形形状の誘電体フィラー粒子の平均長径の関係としては、（略三角状粒子の平均長径 $\geq$ 略長方形形状粒子の平均長径）の関係になるように調整するのがよい。特に、（略三角状粒子の平均長径 $>$ 略長方形形状粒子の平均長径）の関係になるように調整するのがよい。小さい平均長径の誘電体フィラーが、大きい平均長径の誘電体フィラーの隙間により容易に充填されることにより、充填量及び粒子同士の接触性の向上が更に良好にできるからである。ここにいう「平均長径」の測定は、高誘電率複合材料のラップ断面（いわゆる鏡面研磨面）の組織観察するのがよい。例えば、倍率500倍のSEM像を撮影した写真を用いて確認するのが簡便でよい。長径は、一つの誘電体フィラー粒子の最も離れた2点間を直線で結び、その長さを採るのがよい。上記のSEM像の写真1枚あたりから任意に10の誘電体フィラー粒子を抽出し、その平均値を採る。一つの試料については、少なくとも3個所以上の場所について同様の作業を行い、その総合平均値を誘電体フィラー粒子の平均長径として採る。

【0016】本発明において「略三角状」とは、高誘電率複合材料のラップ研磨面に露出する大きい平均長径を有する誘電体フィラーの粒子形状を、電子顕微鏡や光学顕微鏡観察下で三角形と認識できる形状のことをいう。また、「略長方形形状」とは、高誘電率複合材料のラップ研磨面に露出する大きい平均長径を有する誘電体フィラーの粒子形状を、電子顕微鏡や光学顕微鏡観察下で長方形と認識できる形状のことをいう。ここにいう「長方形と認識できる」とは、正長方形形状のみならず、菱形、平行四辺形状になっているものも含む概念である。

【0017】ここにいう「認識できる」とは、必ずしも厳密な三角形や長方形ではなくても、第三者がその輪郭形状を社会通念上分類するとすれば、三角形及び長方形と判断できるものであればよいことを示す。例えば、厳密に角部の数が3つ及び4つで無くても、第三者が分類上、三角形及び長方形と判断できるものであればよい。また、辺に凹凸や多少の湾曲を有する形状や、角部を丸く面取りした形状であってもよい。つまり、辺の一部を観察すれば厳密には三角形及び長方形ではないが、全体として観察した場合に三角形及び長方形と分類認識されるものであればよい。必ずしも正三角形や正長方形でなくともよい。

【0018】図1は高誘電率複合材料のラップ断面の具体例（実施例9）のSEM写真像である。図2は図1のSEM写真像を模式的に表わした説明図である。図2中、30a～30jは略三角状の誘電体フィラーの粒子を示し、40a～40gは略長方形形状の誘電体フィラーの粒子を示す。ここに例示するように、各粒子は必ずしも厳密な三角形及び長方形ではないが、第三者がその輪郭形状を社会通念上分類するとすれば、三角形及び長

(4) 001-237507 (P2001-237507A)

形と判断できるものであることがわかる。

【0019】(d)該高誘電率複合材料100体積%に含まれる該誘電体フィラーが65~90体積%であること。誘電体フィラーの添加量は、高誘電率複合材料全体(100体積%)の65~90体積%がよい。かかる範囲に規定する理由は以下のようである。誘電体フィラーの添加量が65体積%以上であれば、誘電体フィラー同士の接触性が向上して、従来の直列モデルから理想的な並列モデルに近づくため、誘電率 $\epsilon$ が急激に上昇するからである。一方、90体積%以上では高誘電率複合材料の成形性が悪くなり、ポイドやクラックが発生しやすくなってしまうので好ましくない。

【0020】請求項1の発明は、大きい平均粒子径を有する誘電体フィラーの平均長径と、小さい平均長径を有する誘電体フィラーの平均長径とを所定の範囲に特定した高誘電率複合材料であるとよい。

【0021】大きいフィラーの平均長径は5~50 $\mu\text{m}$ で、最大長径が80 $\mu\text{m}$ 以下であり、小さいフィラーの平均長径は0.5~3 $\mu\text{m}$ であるとよい。この範囲以外であると、樹脂混連の際に増粘してしまい、誘電体フィラーの高充填が難しくなるからである。すなわち、平均長径の差は最小でも1 $\mu\text{m}$ 以上必要であるとよい。

【0022】大きいフィラーの平均長径が50 $\mu\text{m}$ 以上で最大が80 $\mu\text{m}$ を越えると内層キャパシタとしてシート状に形成するときの成形性が悪くなり、ポイドが発生してしまう。また、小さいフィラーの平均長径が0.5 $\mu\text{m}$ 以下であると、樹脂混連の際に増粘してしまい、誘電体フィラーの高充填が難しくなる。

【0023】高誘電率複合材料100質量%中に含まれる大きい平均粒子径を有する誘電体フィラーと、小さい平均粒子径を有する誘電体フィラーの各配合率の関係を特定した高誘電率複合材料であると尚よい。各誘電体フィラーの配合率としては、大きい平均粒子径を有する誘電体フィラーが80~95質量%、小さい平均粒子径を有する誘電体フィラーが5~20質量%がよい。この範囲外では、大きい誘電体フィラーの隙間を小さい誘電体フィラーが十分に埋めることができず、高充填化できないからである。また、小さい誘電体フィラー所定の範囲よりも多いと、増粘により高充填できない。

【0024】請求項2の発明は、前記熱硬化性樹脂の硬化収縮率が3~20%である高誘電率複合材料を要旨とする。用いる熱硬化性樹脂の硬化収縮率を所定の範囲に規定することにより高誘電率複合材料の誘電率が上昇する理由の詳細は不明であるが、熱硬化性樹脂の硬化収縮により高誘電率複合材料に含まれる高誘電率フィラー同士が強制的に接触し合うためと推察される。硬化収縮の大きな樹脂を用いて誘電体フィラー同士を強制的に接触し合うようにすると、三次元的に連続な高誘電体成分が形成される。この状態の等価回路は、従来の「直列モデル」から理想的な「並列モデル」に近づき、よって複合

材料全体の誘電率は上昇するものと推察される。

【0025】熱硬化性樹脂の硬化収縮率は3~20%の範囲であればよいが、好ましくは3~10%、特に3~7%である。熱衝撃試験後の誘電体層の容量値の変化率を小さく抑えることができるからである。熱硬化性樹脂の硬化収縮率を所定の範囲に設定することで、誘電体フィラーに圧縮応力がかかって誘電体フィラー間の接触状態が良好に保たれるとともに、誘電体層自体の熱応力に対する耐久性(特に、耐熱衝撃性)を高めることができる。一方、熱硬化性樹脂の硬化収縮率が範囲外になると、誘電体層の信頼性が低下する傾向である。硬化収縮率が3%以下であると、高誘電率フィラー同士を引き寄せて連続的に接触させる力が小さいため高誘電率フィラー同士の接触が少なくなり、複合材料の誘電率が小さくなる。硬化収縮率が20%以上であると熱硬化時に発生する内部応力が大きくなり、複合材料にクラックが発生することがある。

【0026】ここにいう「硬化収縮率」とは、以下の方法により求めたものをいう。すなわち、型(φ83mmのテフロン製シャーレ)に熱硬化性樹脂単体を流し込み、150℃×5時間の条件にて加熱硬化させ、得られた硬化体の寸法と型の寸法から以下の数式1を用いて算出する。

【0027】

【数1】硬化収縮率 =  $\{1 - (\text{硬化後の樹脂寸法} / \text{型寸法})\} \times 100 (\%)$

【0028】請求項3の発明は、以上説明した高誘電率複合材料からなる誘電体層を有するプリント配線板を要旨とする。高性能な誘電体層を容易に内蔵可能である。コンデンサ内蔵配線基板を得るのに好適である。

【0029】高性能な誘電体層を内層キャパシタ等にいれば、プリント配線板の小型化、高性能化を図ることができる。係るプリント配線板は、ICパッケージ、高周波用途のモジュール基板、電子部品等に適用可能である。特に、電氣的雑音(高周波雑音等)の影響を受けやすい用途に好適である。

【0030】具体的な構成としては、例えば図3及び図4の構造が挙げられる。図3は樹脂層3及び樹脂層4で誘電体層2を挟んだラミネート法の例である。誘電体層2を第1キャパシタ用配線層6及び第2キャパシタ用配線層7で挟んだ部分がキャパシタを構成している。また、図4はコア基板8の上に誘電体層18を形成した例である。誘電体層18を第1キャパシタ用配線層17及び第2キャパシタ用配線層20で挟んだ部分がキャパシタを構成している。

【0031】本発明は図3及び図4に示す具体的構成や製造方法にのみ限定されるものではなく、内層キャパシタとしての機能を有効に発揮できる構成であればよい。プリント配線板の構成は、片面のみに形成する型でも両面に形成する型でも利用できる。必要に応じて感光性の

(5) 001-237507 (P2001-237507A)

永久レジストを保護膜として形成するのがよい。

【0032】請求項4の発明は、以上説明した高誘電率複合材料からなる誘電体層を有する多層プリント配線板を要旨とする。高性能な誘電体層を容易に内蔵可能であるとともに、高密度配線化及び高容量化に対応したコンデンサ内蔵配線基板を得るのに好適である。特に、層間接続用のビアホールやスルーホールをレーザーを用いて多層プリント配線板を形成する場合（いわゆるレーザービアプロセス）に好適である。高誘電率複合材料に用いる熱硬化性樹脂に感光性を持たせる必要がないので、プレッシャークッカーバイアス試験等に対して高い信頼性を得ることができるからである。

【0033】高性能な誘電体層を多層化技術を用いて内層キャパシタ等として内蔵すれば、プリント配線板のより一層の小型化、高性能化を図ることができる。係るプリント配線板は、多層ICパッケージ、高周波用途の多層モジュール基板、多層電子部品等に適用可能である。特に、電気的雑音（高周波雑音等）の影響を受けやすい用途に好適である。

【0034】具体的な構成としては、例えば図5及び図6の構造が挙げられる。図5はビルドアップ法の一例を示す。スルーホール内を充填材9で充填したコア基板8上に第1樹脂絶縁層10を形成し、フォトリソグラフィ技術とメッキ技術を用いて第1ビア配線層11及び第1キャパシタ用配線層12を形成する。次いで高誘電体層13を形成し、その上にレーザービア技術とメッキ技術を用いて第2ビア配線層14及び第2キャパシタ用配線

層15を形成する。更にその上に第2樹脂絶縁層16を形成する。図6もビルドアップ法による例である。スルーホール内を充填材9で充填したコア基板8上にフォトリソグラフィ技術とメッキ技術を用いて第1キャパシタ用配線層17を形成する。次いで高誘電体層18を形成し、その上にレーザービア技術とメッキ技術を用いて第2ビア配線層19及び第2キャパシタ用配線層20を形成する。更にその上に樹脂絶縁層21を形成する。

【0035】本発明は図5及び図6に示す具体的構成や製造方法にのみ限定されるものではなく、内層キャパシタとしての機能を有効に発揮できる構成であればよい。多層プリント配線板の構成は、片面積層型でも両面積層型でも利用できる。多層化には、ラミネート法、ビルドアップ法等の公知技術を用いて形成できる。必要に応じて感光性の永久レジストを保護膜として形成するのがよい。

#### 【0036】

##### 【実施例】（1）高誘電率複合材料の作製

樹脂及び誘電体フィラーを、表1に示す混合比で混合し、3本ロールミルにて混練を行い、高誘電率複合材料を作製する。用いる樹脂及び誘電体フィラーの詳細を以下に示す。尚、「バイモダール」は誘電体フィラーが2種の平均粒子径を有する実施例の場合をいい、一方、「シングルモード」は誘電体フィラーが単一の平均粒子径を有する比較例の場合をいう。

【0037】表1中の表記において、

樹脂A：エポキシ樹脂（油化シェル製、YL983U）	95質量%
イミダゾール系硬化剤（四国化成製、2E4MZ-CN）	5質量%
樹脂B：エポキシ樹脂（油化シェル製、E-828）	100質量%
イミダゾール系硬化剤（四国化成製、2E4MZ-CN）	5質量%
酸無水物硬化剤（日本化薬製、カヤハードMCD）	85質量%
樹脂C：エポキシ樹脂（油化シェル製、E-828）	100質量%
酸無水物硬化剤（日本化薬製、カヤハードMCD）	85質量%
トリフェニルフォスフィン	1質量%
フィラー：チタン酸バリウム（焼結体後、粉碎、分級したもの）	
バイモダール：20 $\mu$ m（90質量%）+2 $\mu$ m（10質量%）	
シングルモード：20 $\mu$ m	

である。

【0038】これら樹脂成分の硬化収縮率は、以下の方法により求める。すなわち、型（ $\phi$ 83mmのテフロンシャーレ）に上記樹脂成分を流し込み、150℃×5時間の条件にて加熱硬化させ、得られた硬化体の寸法と金型の寸法から前記の数式1を用いて算出する。これら樹脂成分の硬化収縮率は、樹脂Aでは6.4%、樹脂Bでは2.5%、樹脂Cでは1.0%である。

【0039】（2）高誘電率複合材料の硬化体の誘電率の測定

厚み0.8mmの銅基板上に（1）で作製した高誘電率複合材料を厚さ300 $\mu$ mに塗布し、150℃×5時間

で硬化させ、高誘電率複合材料の硬化体を作製する。上記硬化体の1MHzにおける誘電率をインピーダンスアナライザ（ヒューレットパッカード製、HP4194A）を用いて、JIS K 6911に準じて測定する。結果を表1に示す。

##### 【0040】（3）耐熱衝撃試験

上記（2）で誘電率を測定した試料をタバイエスベック製耐熱衝撃試験機に入れ、-55～+125℃の条件で1000サイクル行う。試験終了後の試料を再び上記（2）と同じ条件で誘電率を測定し、その変化率を求めた。結果を表1に併記する。

##### 【0041】



(6) 001-237507 (P2001-237507A)

【表1】

試料 番号	樹脂 の種類	硬化 収縮(%)	誘電体フィラー		誘電率 $\epsilon$ (初期値)	変化率 (%)
			平均粒径のモード	添加量(体積%)		
1	A	6.4	—	0	4	—
2	A	6.4	バイモーダル	25	6	<1
3	A	6.4	バイモーダル	30	8	<1
4	A	6.4	バイモーダル	50	27	<1
5	A	6.4	バイモーダル	60	44	<1
6	A	6.4	バイモーダル	65	60	<1
7	A	6.4	バイモーダル	70	85	<1
8	A	6.4	バイモーダル	75	110	<1
9	A	6.4	バイモーダル	78	120	<1
10	A	6.4	バイモーダル	85	130	<1
11	A	6.4	バイモーダル	90	160	3
12	A	6.4	バイモーダル	95	180	6
13	A	6.4	シングルモード	60	38	5
14	B	2.5	バイモーダル	78	90	8
15	B	2.5	シングルモード	60	25	6
16	C	1.0	バイモーダル	78	86	12
17	C	1.0	シングルモード	60	20	8

【0042】表1の結果より、本発明によれば、誘電率が8から180までの広い範囲の高誘電率複合材料が得られることがわかる。誘電体フィラーの含有量を65体積%以上にすることで、誘電率が50以上の優れた高誘電率複合材料が得られることがわかる。特に、誘電体フィラーの含有量を70体積%以上にすることで、誘電率が90以上の極めて優れた高誘電率複合材料が得られることがわかる。

【0043】表1の結果より、本発明によれば、広い範囲の誘電率を有する高誘電率複合材料が得られることがわかる。誘電体フィラーの含有量を65体積%以上にすることで、誘電率が50以上の優れた高誘電率複合材料が得られることがわかる。特に、誘電体フィラーの含有量を70体積%以上にすることで、誘電率が85以上の極めて優れた高誘電率複合材料が得られることがわかる。図7に試料番号1～試料番号9までの誘電体フィラーの含有量に対する誘電率 $\epsilon$ の変化を表わすグラフを示す。誘電体フィラーの含有量が65質量%を越えると、誘電率 $\epsilon$ が急激に上昇することがわかる。

【0044】表1の結果より、熱硬化性樹脂の硬化収縮率が3%未満では、熱衝撃試験後の変化率が大きくなることがわかる。熱硬化性樹脂の硬化収縮率を3%以上に設定することで、誘電体フィラーに圧縮応力がかかることで、誘電体フィラー間の接触状態が良好に保たれるとともに、誘電体層自体が熱応力に対して耐久性が高まっていることがわかる。

## 【0045】

【発明の効果】本発明の高誘電率複合材料は、熱硬化性樹脂と高誘電率粒子との混合物を主成分としながらも高い誘電率を発現できる。係る高誘電率複合材料からなる高誘電率層は、MPU用プラスチック製ICパッケージ等で問題となる電氣的雑音（特に高周波雑音）を除去する為の、内層キャパシタとして用いることができる。係る高性能な高誘電率層を内層キャパシタ等に用いたプリント配線板は、小型化、高性能化を図ることができる。

## 【図面の簡単な説明】

【図1】実施例9の高誘電率複合材料のラップ研磨面のSEM写真像。

【図2】実施例9の高誘電率複合材料のラップ研磨面のSEM写真像の説明図。

【図3】誘電体層を有するプリント配線板の一実施例の構造図。

【図4】誘電体層を有するプリント配線板の一実施例の構造図。

【図5】誘電体層を有する多層プリント配線板の一実施例の構造図。

【図6】誘電体層を有する多層プリント配線板の一実施例の構造図。

【図7】誘電体フィラーの含有量に対する誘電率 $\epsilon$ の変化を示すグラフ。

## 【符号の説明】

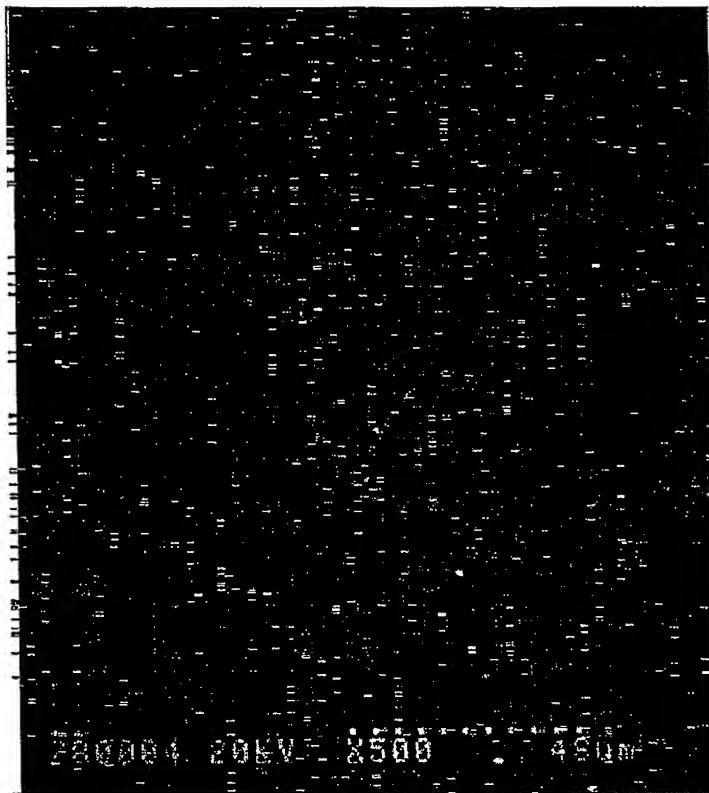
1 多層プリント配線板

!(7) 001-237507 (P2001-237507A)

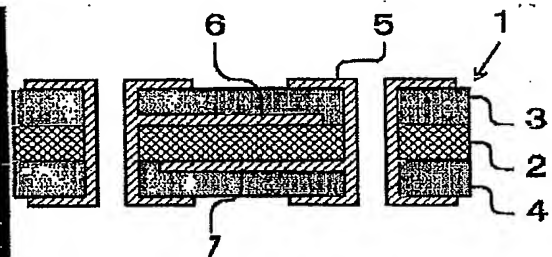
- 2 高誘電体層
- 3 樹脂絶縁層
- 4 樹脂絶縁層
- 5 銅配線層

- 6 キャパシタ用銅配線層
- 7 キャパシタ用銅配線層
- 30 略三角状の誘電体フィラー
- 40 略長方形形状の誘電体フィラー

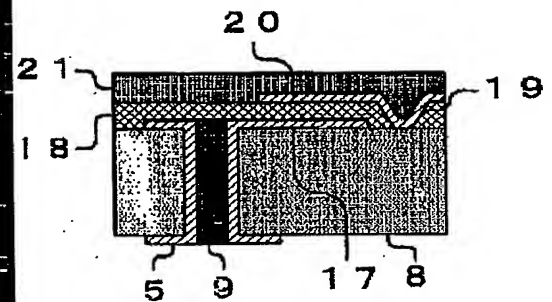
【図1】



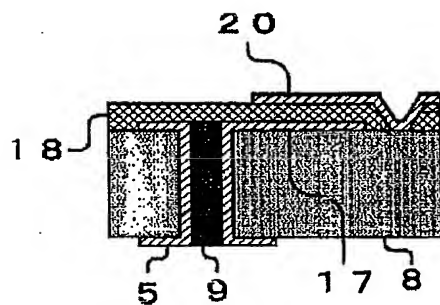
【図3】



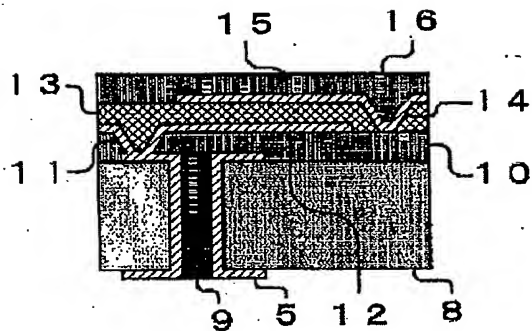
【図6】



【図4】

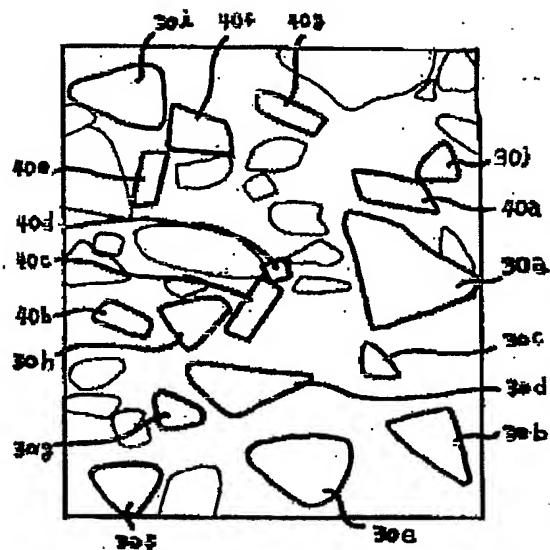


【図5】

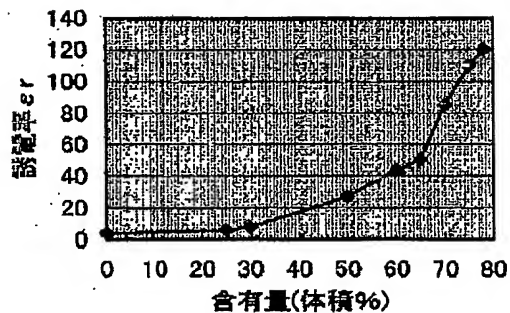


!(8) 001-237507 (P2001-237507A)

【図2】



【図7】



フロントページの続き

(51)Int. Cl. 7

識別記号

F I

(参考)

H 0 1 L 23/12  
23/14  
H 0 5 K 3/46  
// H 0 1 B 3/00  
H 0 5 K 1/16

H 0 5 K 3/46  
H 0 1 B 3/00  
H 0 5 K 1/16  
H 0 1 L 23/12  
23/14

T  
A  
D  
B  
N  
R

F ターム(参考) 4E351 BB03 BB30 BB31 BB35 DD41  
EE02 EE06 EE16 GG06  
4J002 AA021 CD031 CD051 DE186  
FA116 FD016 FD206 GQ05  
5E346 CC21 GG28 HH01  
5G303 AA05 AB06 BA12 CA01 CA09  
CB03 CB35